

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

REC'D 18 MAY 2006


PCT

WIPO

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

(Kapitel II des Vertrags über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts B03/0996PC	WEITERES VORGEHEN siehe Formblatt PCT/IPEA/416	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP2005/000752	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 26.01.2005	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 26.01.2004
Internationale Patentklassifikation (IPC) oder nationale Klassifikation und IPC INV. C07D233/58		
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT		
<p>1. Bei diesem Bericht handelt es sich um den internationalen vorläufigen Prüfungsbericht, der von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde nach Artikel 35 erstellt wurde und dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt wird.</p> <p>2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 7 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.</p> <p>3. Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; diese umfassen</p> <p>a. <input checked="" type="checkbox"/> (an den Anmelder und das Internationale Büro gesandt) insgesamt 2 Blätter; dabei handelt es sich um</p> <p><input type="checkbox"/> Blätter mit der Beschreibung, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit Berichtigungen, denen die Behörde zugestimmt hat (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsvorschriften).</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Blätter, die frühere Blätter ersetzen, die aber aus den in Feld Nr. 1, Punkt 4 und im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde eine Änderung enthalten, die über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgeht.</p> <p>b. <input type="checkbox"/> (nur an das Internationale Büro gesandt) insgesamt (bitte Art und Anzahl der/des elektronischen Datenträger(s) angeben), der/die ein Sequenzprotokoll und/oder die dazugehörigen Tabellen enthält/enhalten, nur in elektronischer Form, wie im Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll angegeben (siehe Abschnitt 802 der Verwaltungsvorschriften).</p>		
<p>4. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. I Grundlage des Berichts</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. II Priorität</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. III Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. IV Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. VI Bestimmte angeführte Unterlagen</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. VII Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. VIII Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung</p>		
Datum der Einreichung des Antrags 10.11.2005	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 17.05.2006	
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Molina de Alba, J Tel. +49 89 2399-7823	



Feld Nr. 1 Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Sprache** beruht der Bericht auf der internationalen Anmeldung in der Sprache, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.
- ☐ Der Bericht beruht auf einer Übersetzung aus der Originalsprache in die folgende Sprache, bei der es sich um die Sprache der Übersetzung handelt, die für folgenden Zweck eingereicht worden ist:
- ☐ internationale Recherche (nach Regeln 12.3 und 23.1 b))
 - ☐ Veröffentlichung der internationalen Anmeldung (nach Regel 12.4)
 - ☐ internationale vorläufige Prüfung (nach Regeln 55.2 und/oder 55.3)
2. Hinsichtlich der **Bestandteile*** der internationalen Anmeldung beruht der Bericht auf *(Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt)*:

Beschreibung, Seiten

1-25 in der ursprünglich eingereichten Fassung

Ansprüche, Nr.

1-12 eingereicht mit dem Antrag

- ☐ einem Sequenzprotokoll und/oder etwaigen dazugehörigen Tabellen - siehe Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll
3. ☐ Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:
- ☐ Beschreibung: Seite
 - ☐ Ansprüche: Nr.
 - ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
 - ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
 - ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):
4. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der diesem Bericht beigelegten und nachstehend aufgelisteten Änderungen erstellt worden, da diese aus den im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2 c)).
- ☐ Beschreibung: Seite
 - ☐ Ansprüche: Nr.
 - ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
 - ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
 - ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):

* Wenn Punkt 4 zutrifft, können einige oder alle dieser Blätter mit der Bemerkung "ersetzt" versehen werden.

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2005/000752

Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35 (2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

- | | |
|--------------------------------|----------------------|
| 1. Feststellung | |
| Neuheit (N) | Ja: Ansprüche 9-12 |
| | Nein: Ansprüche 1-8 |
| Erfinderische Tätigkeit (IS) | Ja: Ansprüche |
| | Nein: Ansprüche 1-12 |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) | Ja: Ansprüche 1-12 |
| | Nein: Ansprüche: |

2. Unterlagen und Erklärungen (Regel 70.7):

siehe Beiblatt

Feld Nr. VI Bestimmte angeführte Unterlagen

1. Bestimmte veröffentlichte Unterlagen (Regel 70.10)
- und / oder
2. Nicht-schriftliche Offenbarungen (Regel 70.9)

siehe Beiblatt

Feld Nr. VII Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung

Es wurde festgestellt, daß die internationale Anmeldung nach Form oder Inhalt folgende Mängel aufweist:

siehe Beiblatt

Feld Nr. VIII Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:

siehe Beiblatt

1) Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:

- D1:** WO 2005/019183 A (BASF AKTIENGESELLSCHAFT; MAASE, MATTHIAS; MASSONNE, KLEMENS) 3. März 2005 (2005-03-03)
D2: WO 01/77081 A (THE QUEEN'S UNIVERSITY OF BELFAST; EARLE, MARTYN, JOHN; SEDDON, KENNET) 18. Oktober 2001 (2001-10-18)
D3: EP-A-0 291 074 (MITSUBISHI PETROCHEMICAL CO., LTD) 17. November 1988 (1988-11-17)

2) Die vorliegende Anmeldung bezieht sich auf ein Verfahren zur Modifizierung ionischer Flüssigkeiten, die als Kation ein Phosphonium- und/oder Ammoniumkation enthalten und bei dem das Anion ein Halogenid, Arylsulfat, Alkylsulfonat, Sulfat, Hydrogensulfat, Alkylsulfat, Hydrogencarbonat, Carbonat, Triflat oder Carboxylat ist. Im ersten Verfahrensschritt wird die ionische Flüssigkeit mit einem Alkoholat, Hydrogencarbonat, Carbonat, Carboxylat oder Hydroxid umgesetzt. Die resultierende basische Flüssigkeit wird in einem zweiten Verfahrensschritt mit einer Säure neutralisiert. Die Anmeldung bezieht sich weiter auf ionische Flüssigkeiten der Formel $[Q^+][BR'_n(OR'')_m]$ und deren Lösungen.

3) Zu Punkt I

Die am 10.11.2005 eingereichten Änderungen bringen Sachverhalte ein, die im Widerspruch zu Artikel 34(2)(b) PCT über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgehen. Es handelt sich dabei um die Definition des Kations $[Q^+]$ in Anspruch 9 als "Phosphonium- und/oder Ammonium-Kation". Die Anmelderin hat als Basis für diese Änderung die Passage auf S. 4, Z. 6-7 erwähnt. Jedoch wird $[Q^+]$ dabei nicht bloß als "ein Phosphonium- und/oder Ammonium-Kation" definiert, sondern als ein Phosphonium- und/oder Ammonium-Kation ausgewählt aus einer Liste verschiedener angegebener Gruppen (vgl. S. 4, Z. 4-S. 7, Z. 8). Die Entfernung dieser Einschränkung resultiert in einer Erweiterung des ursprünglichen Sachverhalts der Anmeldung.

Die folgende Prüfung der Patentbarkeit basiert daher auf einem Anspruchsatz bei dem das Merkmal $[Q^+]$ so definiert ist, wie in der ursprünglichen Fassung der Anmeldung geschehen - und zwar wie auf S. 4, Z. 4-S. 7, Z. 8.

4) Zu Punkt V

4.1 Neuheit (Art. 33(2) PCT)

D2 offenbart ein Verfahren zur Herstellung von Imidazol-Carbene aus Imidazolium-Chloriden in höher Ausbeute (90-95 %). Das Verfahren erfolgt durch Erhitzen des Imidazolium-Chlorids in der Anwesenheit einer starken Base wie Alkalimetall-Alkoxid, Natriumhydrid oder Natriumamid (vgl. S. 1, Z. 5-6 und 17-19; S. 3, Z. 1-11 und 19-35). Die geformten Carbene werden im Kugelrohr destilliert und durch Reaktion mit einer Säure, die das gewünschte Anion enthält, zu flüssigen Imidazolium-Salzen umgesetzt (vgl. S. 4, Z. 17-S. 5, Z. 10 und S. 6, Z. 28-29). In den Beispielen werden 1,3-Dialkyl-Imidazol-Carbene hergestellt durch Zugabe von Kalium-t-Butoxid zum entsprechenden 1,3-Dialkyl-Imidazoliumchlorid. Umsatz des Carbens mit einer Säure oder mit einem Alkohol ergibt die flüssigen 1,3-Dialkyl-Imidazoliumsalze wie z.B. 1-Butyl-3-Methylimidazolium-Hydrogencarbonat, 1-Ethyl-3-Methylimidazolium-Methoxid, 1-Butyl-3-Methylimidazolium-Propoxid, 1-Butyl-3-Methylimidazolium-Acetat, 1-Hexyl-3-Methylimidazolium-Hydrogencarbonat und 1-Octyl-3-Methylimidazolium-Acetat.

Auch wenn im unabhängigen Anspruch 1 erwähnt wird, dass die Umsetzung der zu modifizierenden ionischen Flüssigkeit mit einer starken Base in einer stark basischen ionischen Flüssigkeit resultiert, scheint bei den erfindungsgemäßen Beispielen I.1 bis I.5 (Alkoholatmethode) nicht der Fall zu sein. Bei diesen Beispielen wurden die gleichen Flüssigkeiten und Basen als Anfangsprodukte umgesetzt wie in **D2**. Unter diesen Bedingungen ist es aus **D2** klar, dass das hergestellte Zwischenprodukt ein Carben ist und nicht eine ionische Flüssigkeit. Daher ist der Umfang des Anspruchs 1 unklar (Art. 6 PCT) und kann nicht aus dem in **D2** beschriebenen Verfahren unterschieden werden. Folglich wird **D2** als relevant für die Neuheit der Ansprüche 1 bis 8 angesehen.

D3 beschreibt ein Verfahren für die Herstellung von hochreinen Ammonium- oder Phosphoniumquartären durch Reaktion eines tertiären Amins oder Phosphins mit einem Kohlensäurediester (vgl. S. 3, Z. 32-45). Das erhaltene Ammonium- oder Phosphoniumcarbonat wird durch Zugabe einer beliebigen Säure decarboxyliert, was die Herstellung des Ammonium- oder Phosphoniumsalzes mit dem gewünschten Anion erlaubt. Gemäß **D3** ist diese Methode eine Alternative zum bekannten Verfahren für die Herstellung von Ammonium- oder Phosphoniumsalzen. Ein Ammonium- oder Phosphoniumhalid wird

zuerst durch Anionenaustausch zu Ammonium- oder Phosphoniumhydroxid umgesetzt. Danach ergibt die Zugabe einer Säure das gewünschte Ammonium- oder Phosphoniumsalz (vgl. S. 2, Z. 42-47 und S. 3, Z. 15-21). **D3** ist nicht relevant für die Neuheit der Anmeldung indem es allgemeine Ammonium- und Phosphoniumsalze erwähnt aber nicht flüssige Ammonium- oder Phosphoniumsalze.

4.2 Erfinderische Tätigkeit (Art. 33(3) PCT)

In Folge der oben erhobenen Neuheitseinwände, kann nur der Gegenstand der Ansprüche 9-12 als neu angesehen werden. Dieser Gegenstand ist doch offensichtlich im Hinblick auf die in **D2** und **D3** beschriebenen Verfahren zur Herstellung von Ammonium- oder Phosphoniumquartären. Da die in den Ansprüchen 9-12 beanspruchten ionischen Flüssigkeiten keine unerwarteten Eigenschaften aufweisen, kann eine erfinderische Tätigkeit für die vorliegende Anmeldung nicht anerkannt werden.

4.3 Gewerbliche Anwendbarkeit (Art. 33(4) PCT)

Wird für alle Ansprüche anerkannt.

5) Zu Punkt VI

D1 wurde nach dem Anmeldedatum (26.01.2005) der vorliegenden Anmeldung veröffentlicht, und zwar am 03.03.2005. Gemäß Regel 64.1(b)(ii) PCT gehört **D1** nicht zum Stand der Technik. Im europäischen Verfahren wird **D1** aber zum Stand der Technik gemäß Art. 54(3) EPÜ gehören, da dieses Dokument die frühere Priorität vom 21.07.2003 beansprucht.

6) Zu Punkt VII

Im Widerspruch zu den Erfordernissen der Regel 5.1 a) ii) PCT werden in der Beschreibung weder der in den Dokumenten **D1-D3** offenbarte einschlägige Stand der Technik noch diese Dokumente angegeben.

7) Zu Punkt VIII

Die Anmeldung erfüllt nicht die Erfordernisse des Artikels 6 PCT, weil Anspruch 1 nicht klar ist:

- Die Herstellungen von EMIM Acetat, EMIM Saccharinat, EMIM Dihydrogenborat und EMIM Cyanurat auf S. 23, Z. 26-34 und auf S. 24, Z. 11-S. 25, Z. 2 (Beispiele II.3 und II.5-II.7, Bariummethode) entsprechen nicht dem in Anspruch 1 beschriebenen Verfahren. Während in Anspruch 1 klar definiert wird, dass das beanspruchte Verfahren zwei Schritte enthält, und zwar:

- a. Umsetzung der zu modifizierenden ionischen Flüssigkeit mit einer Base und
- b. Neutralisierung mit einer Säure der aus a. resultierenden Flüssigkeit,

wird bei den Herstellungen auf S. 23, Z. 26-34 und auf S. 24, Z. 11-S. 25, Z. 2 die zu modifizierende Flüssigkeit ausschließlich mit einem Salz umgesetzt.

- Anspruch 1 beschreibt ein Verfahren, bei dem die Umsetzung der zu modifizierenden ionischen Flüssigkeit mit einer starken Base in einer stark basischen ionischen Flüssigkeit resultiert. Jedoch entsprechen die erfindungsgemäßen Beispielen I.1 bis I.5 (Alkoholatmethode) diesem Verfahren nicht, denn, wie in **D2** gezeigt, bei den genannten Beispielen sind die Zwischenprodukte keine ionischen Flüssigkeiten, sondern Carbene. Dieser Widerspruch zwischen den Ansprüchen und Beispielen macht den Gegenstand der Ansprüche unklar.

Geänderte Patentansprüche

1. Verfahren zur Modifizierung ionischer Flüssigkeiten, die als Kation ein Phosphonium- und/oder Ammoniumkation und ein Anion, das ausgewählt ist aus der Gruppe, bestehend aus Halogeniden, Arylsulfonaten, Alkylsulfonaten, Sulfat, Hydrogensulfat, Alkylsulfaten, Hydrogencarbonat, Carbonat, Triflaten und Carboxylaten, enthält, dadurch gekennzeichnet, dass diese ionischen Flüssigkeiten in einem ersten Verfahrensschritt mit einem Alkoholat, einem Hydrogencarbonat, einem Carbonat, einem Carboxylat oder einem Hydroxid umgesetzt werden, wobei stark basische ionische Flüssigkeiten resultieren, und die stark basischen ionischen Flüssigkeiten in einem zweiten Verfahrensschritt mit einer Säure neutralisiert werden.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass bei Einsatz von Alkoholaten nach der in dem zweiten Verfahrensschritt erfolgenden Neutralisation in der Neutralisation gebildeter Alkohol destillativ entfernt wird.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass nach dem ersten Verfahrensschritt der ausgefallene Feststoff abgetrennt wird.
4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass die ionische Flüssigkeit ein heterocyclisches Kation enthält.
5. Verfahren nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, dass die ionische Flüssigkeit ein Imidazolium-Kation enthält.
6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass in dem zweiten Verfahrensschritt eine Neutralisation der stark basischen ionischen Flüssigkeit mit einer Säure bis zu einem pH-Wert erfolgt, der dem Äquivalenzpunkt des entsprechenden Säure-Base-Paares entspricht.
7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass die Umsetzung in dem ersten Verfahrensschritt bei einer Temperatur von 5 bis 100°C stattfindet.
8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass die Umsetzung in dem zweiten Verfahrensschritt bei einer Temperatur von - 10 bis 100°C stattfindet.

9. Ionische Flüssigkeit der allgemeinen Formel $[Q^+][BR'_n(OR'')_m]^-$ mit $[Q^+]$ Phosphonium- und/oder Ammonium-Kation und $n = 1, 2, 3$ und $m = 4 - n$, wobei R' und R'' , jeweils unabhängig voneinander, ausgewählt sind aus der Gruppe, bestehend aus Wasserstoff, C_1 - C_{18} -Alkyl, C_6 - C_{12} -Aryl, C_5 - C_{12} -Cycloalkyl, gegebenenfalls durch ein oder mehrere Sauerstoff- und/oder Schwefelatome und/oder ein oder mehrere substituierte oder unsubstituierte Iminogruppen unterbrochenes C_2 - C_{18} -Alkyl, oder einen fünf- bis sechsgliedrigen, Sauerstoff-, Stickstoff- und/oder Schwefelatome aufweisenden Heterocyclen bedeuten oder zwei von ihnen gemeinsam einen ungesättigten, gesättigten oder aromatischen und gegebenenfalls durch ein oder mehrere Sauerstoff- und/oder Schwefelatome und/oder ein oder mehrere substituierte oder unsubstituierte Iminogruppen unterbrochenen Ring bilden, wobei die genannten Reste jeweils durch funktionelle Gruppen, Aryl, Alkyl, Aryloxy, Alkyloxy, Halogen, Heteroatome und/oder Heterocyclen substituiert und Reste R' miteinander verbunden sein können.
10. Ionische Flüssigkeiten nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, dass R' Phenyl und n gleich 3 ist.
11. Ionische Flüssigkeiten nach Anspruch 9 oder 10, dadurch gekennzeichnet, dass das Kation $[Q^+]$ ein N,N-Dialkylimidazolium-Kation ist.
12. Lösungen, enthaltend mindestens eine ionische Flüssigkeit gemäß einem der Ansprüche 9 bis 11.